

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24710152

研究課題名(和文) 動的電子輸送シミュレータの開発と応用

研究課題名(英文) Development and application of a time-dependent electron-transport simulator

研究代表者

江上 喜幸 (Egami, Yoshiyuki)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：20397631

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円、(間接経費) 1,110,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では時間依存密度汎関数理論に基づく第一原理電子輸送シミュレータを開発し、ナノ物質中を伝播する電子の輸送特性に関する動的挙動を解析することで、次世代電子デバイス材料として有用な材料のデザインに向けた基礎研究を行うことを目的とした。

成果として、分子ワイヤーモデル系を用いたシミュレーションにより、応答速度の遅い輸送チャネルが実験的に観測されにくいことや、分子の幾何構造や電極への吸着状態によって応答速度が大きく変化することなど、新たな知見を得ることができた。今後、本シミュレータを発展させていくことで、ナノ物質の物性研究分野においてさらなる飛躍が期待できると考える。

研究成果の概要(英文)：First-principles electron-transport property simulator based on the time-dependent density functional theory has been developed to demonstrate the dynamic behavior of flowing electrons through nanostructures and explore the suitable materials for novel electronic devices. In this study, the response times of transmission peaks in the conduction channels were compared. It has been found that the contribution to electron transporting can be ignored since the response time of the channel is enough long in the organic molecular chain systems. Moreover, the response time can be affected by change in the conformation of molecule or the condition of interface between the molecule and electrodes.

研究分野：計算物理

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学(マイクロ・ナノデバイス)

キーワード：第一原理計算 電子輸送特性 時間依存密度汎関数法 Impulse Response法 理論物性物理

1. 研究開始当初の背景

現在、一般に広く普及している電子デバイスの多くはシリコンをベースとした素子から構成されているが、近年、デバイスの構造微細化や高集積化が急速に進み、近い将来、既存のロジックや半導体技術では要求される性能を満たすシリコンデバイスを作製することは困難になると考えられている。そこでシリコンに代わる材料としてゲルマニウムやハフニウム、あるいは有機半導体やグラフェン、カーボンナノチューブなどの炭素系ナノ物質を用いたデバイスについて実験研究が盛んに行われている。しかし、デバイス中にナノスケールの構造が表れるため、その原子構造や量子論的電子物性を実験的に捉え、これらの相関関係、量子機能発現のメカニズムや支配的ファクターすべてを理解することは非常に困難である。

そこで、ナノスケールで起こる現象について、その背景にある物理的、化学的エッセンスを抽出し、系統立てた解析を行うことが可能な量子シミュレーションによる理論的側面からの研究が重要視されており、基礎物質科学のみならず、産業やエネルギー、環境分野等、幅広い分野に応用されようとしている。

また、近年では、スーパーコンピュータ「京」に代表されるような多数の演算装置を用いた並列コンピューティングの普及により、より精度の高い大規模シミュレーションが実行可能となっており、新たな知見の獲得に大きな期待が寄せられている。

2. 研究の目的

本研究では、時間依存密度汎関数理論に基づいた量子シミュレーション、特にデバイスとして重要な電子輸送に関するダイナミクス解析を可能とするシミュレータを開発し、これを用いて次世代デバイス材料として有用な物質のデザインに向けた基礎研究を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

まず、2007年に後藤らによって提唱された Impulse Response(IR)法[H. Goto et al., J. Phys.: Cond. Matt. 19, 365205 (2007).]に改良を加え、実践的な研究が可能にした手法へと発展させ、さらにピコ秒~ナノ秒までの動的シミュレーションを可能にするため、大型並列計算機に最適化したアルゴリズムの導入を行い、他の計算手法に比べ格段に高

精度で効率的な動的電子輸送シミュレータの開発を行う。

次に、開発した IR 法を用い、有機分子ワイヤーや炭素系ナノ物質における電子輸送問題に本手法を適用し、電子波の流れ込み開始から定常状態に至るまでの動的挙動を解析することにより、実験的に観測することが困難なリアルタイムの電子輸送プロセスを明らかにすることを目指す。

4. 研究成果

時間依存密度汎関数法(TDDFT)に基づき、ノルム保存型擬ポテンシャル法、局所密度近似法を取り入れた電子輸送シミュレータの開発を行った。また、並列化アルゴリズムの導入も行った。「京」と同様の構成をもつ富士通製 FX10 上での運用を行い、百数十コアの並列計算を実現したが、今後さらなる並列化効率を向上させることで、数百コアの並列計算による、より高精度、大規模、長時間シミュレーションが可能になると期待される。

また、性能確認を兼ねて分子ワイヤーモデルを用いた動的な電子輸送特性の解析を行った。ここでは、分子デバイス研究によく用いられている phenyl chain モデルを採用し、対向する金電極間に吸着した分子について、phenyl ring 間の相対角や電極に対する吸着角度を考慮したシミュレーションを実行した。以下に得られた成果の概要を記す。

(1) terphenyldithiol 分子について、phenyl ring 間の相対角の変化に対する電子輸送特性の違いについてシミュレーションを行った。

定常状態における輸送特性計算では、電子の入射エネルギーの変化に対し、広いエネルギーレンジでなだらかな透過率ピークを示す Ch.1 と、特定のエネルギーにおいて構造変化に対して鋭いピークを示す Ch.2 が見られた。phenyl ring 間の相対角の変化に対し、Ch.1 における透過率は徐々に低下していくのに対し、Ch.2 では構造変化に対して敏感なエネルギーシフトがあるものの、常に透過率の高いピークが見られた。

この系に対し、本研究で開発した IR 法を用いた解析を行った。まず、伝導特性のフェムト秒オーダーでの時間応答を調べた結果、Ch.1 のピークは観察できたが、Ch.2 に対応するピークはみられなかった。離散的なエネルギーグリッド点における透過率を求めているため、エネルギーに

対して敏感なピークを検出できなかった可能性と、シミュレーション時間が短すぎた可能性を考慮し、より細かいエネルギーグリッドを用い、長時間の時間発展計算を実行した。この結果、ピコ秒オーダーのシミュレーションでようやくCh.2に対応するピークが現れることが分かった。

以上のことから、Ch.2の応答はCh.1に比べて非常に緩慢であり、また、THzオーダーの分子内振動が励起される有限温度の系では、分子のコンフォメーションによって敏感に状態が変化するCh.2の寄与はほとんど無視できるという新たな知見が得られた。

- (2) benzenedithiol について、電極への吸着角度に対する時間応答の違いについて、解析を行った。

まず、分子が電極表面に垂直に吸着した状態では、terphenyldithiolの系と同様な2つの電子輸送チャンネルが観察され、IR法による動的な挙動解析の結果、応答速度に大きな違いがあることも分かった。次に、分子を表面に向けて傾けていくと、Ch.2にみられた鋭いピークはブロードになっていった。このときの応答速度を解析した結果、傾きが大きくなるにつれて応答速度が速くなり、Ch.1とCh.2における応答の時間差はほとんどなくなることが分かった。

この結果は、チャンネルの動的な特性を後天的に大きく変化させることが可能であることを示唆しており、ナノスケール材料の電子輸送特性の制御可能性について、大きな展望を与えると期待できる。

- (3) 炭素系ナノ材料であるグラフェンやカーボンナノチューブを対象とした研究では、欠陥の影響を受けず、輸送電子が後方散乱をされない完全透過チャンネルが現れる現象について解析を行った。

研究を進める中で、現状の計算アルゴリズムによる解析だけでは不十分であることが判明し、新たなアルゴリズムの開発に着手した。これにより、本手法の精度や汎用性を大きく高めることができると期待される。

これまでも定常状態における電子輸送現象については、多くの研究成果が報告されているが、本研究課題では輸送チャンネルにお

ける伝播速度の違いなど、定常状態では見えてこない時間応答に着目した新たな切り口からの解析を行い、これまでにない非常に重要な成果を得ることができた。今後、本シミュレータを発展させていくことで、ナノ物質の物性研究分野においてさらなる飛躍が期待できると考える。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4 件)

S. Tsukamoto, T. Ono and Y. Egami: "Ballistic electron transport through nanostructure junctions from a real-space finite-difference approach", *Quant. Matt., in press*. [査読あり]

Y. Egami and K. Hirose: "First-Principles Study on Dynamic Electron-Transport Property through Low Dimensional System", *JPS Conf. Proc.* 1, 016012 (2014). [査読あり]
DOI:10.7566/JPSCP.1.016011

H. Akera, H. Suzuura, and Y. Egami: "Spin relaxation in a zinc-blende (110) symmetric quantum well with doping", *Phys. Rev. B* **89**, 075314 (2014). [査読あり]
DOI:10.1103/PhysRevB.89.075314

T. Ono, Y. Egami, and K. Hirose: "First-principles transport calculation method based on real-space finite-difference nonequilibrium Green's function scheme", *Phys. Rev. B* **86**, 195406/1-13 (2012). [査読あり]
DOI:10.1103/PhysRevB.86.195406

[学会発表](計 12 件)

江上喜幸, 明楽浩史: 『カーボンナノチューブを用いたナノ接合における電子輸送特性の第一原理研究』, 日本物理学会第69回年次大会(東海大学), 27aAP-7 (2014-03-27).

明楽浩史, 鈴浦秀勝, 江上喜幸: 『zinc-blende(110)対称量子井戸におけるスピン緩和とLOフォノン散乱』, 日本物理学会第69回年次大会(東海大学), 27aAW-5 (2014-03-27).

明楽浩史, 鈴浦秀勝, 江上喜幸:

『zinc-blende(110)対称量子井戸におけるスピン緩和』, 第18回 半導体スピン工学の基礎と応用 PASPS-18 (大阪大学), A-2 (2013-12-09).

Y. Egami and K. Hirose: "Ab-initio study on time-dependent electron-transport properties of nanostructures", 16th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (October 28-30, 2013, Jiuhaia Resort & Convention Center, Beijing, China).

江上喜幸, 広瀬喜久治: 『Impulse Response法による単分子接合における動的電子輸送特性の吸着構造依存性に関する研究』, 日本物理学会2013年秋季大会(徳島大学), 28aJA-12 (2013-09-28).

江上喜幸, 明楽浩史: 『炭素系ナノ構造における第一原理電子輸送特性シミュレーション』, 日本物理学会2013年秋季大会(徳島大学), 28aJA-11 (2013-09-28).

明楽浩史, 鈴浦秀勝, 江上喜幸: 『デルタドープGaAs(110)対称量子井戸におけるスピン緩和時間の電子密度依存性』, 日本物理学会2013年秋季大会(徳島大学), 26aDD-9 (2013-09-26).

Y. Egami and K. Hirose: "First-principles study on dynamic electron-transport property through low dimensional system", 12th Asia Pacific Physics Conference (July 14-19, 2013, Makuhari Messe, Chiba, Japan).

明楽浩史, 鈴浦秀勝, 江上喜幸: 『GaAs(110)対称量子井戸におけるスピン緩和時間の不純物分布依存性』, 日本物理学会第68回年次大会(広島大学), 29aXL-8 (2013-03-29).

江上喜幸, 明楽浩史: 『グラフェンナノブリッジにおける電子輸送特性の第一原理研究』, 日本物理学会第68回年次大会(広島大学), 29aXK-5 (2013-03-29).

Y. Egami and K. Hirose: "First-principles study on dynamic transport properties of electrons through molecular chain", 15th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (November 5 - 7, 2012, Institute of Atomic and Molecular Sciences, Academia Sinica, Taipei).

江上喜幸, 広瀬喜久治: 『Impulse Response法による分子ワイヤーにおける

動的電子輸送特性予測』, 日本物理学会2012年秋季大会(横浜国立大学), 21aFF-4 (2012-09-21).

{その他}

ホームページ等

<http://zimg-ap.eng.hokudai.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

江上 喜幸 (EGAMI, Yoshiyuki)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号: 20379631